



Offic de la Propriété  
Intellectu ll  
du Canada

Un organisme  
d'Industrie Canada

Canadian  
Intellectual Property  
Office

An agency of  
Industry Canada

CA 2419209 A1 2003/02/12

(21) **2 419 209**

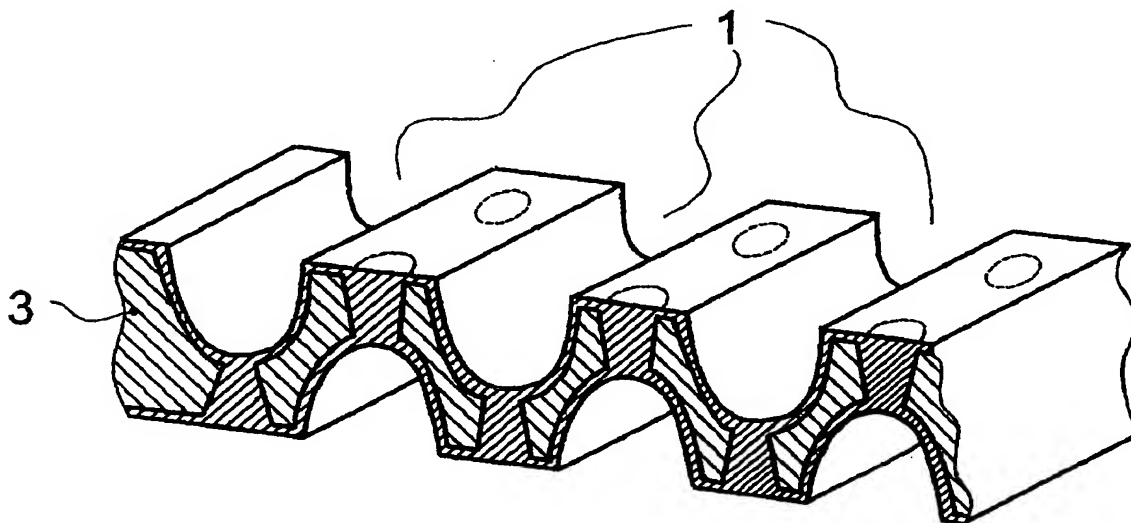
(12) **DEMANDE DE BREVET CANADIEN  
CANADIAN PATENT APPLICATION**

(13) **A1**

(86) Date de dépôt PCT/PCT Filing Date: 2001/08/14  
(87) Date publication PCT/PCT Publication Date: 2003/02/12  
(85) Entrée phase nationale/National Entry: 2003/02/12  
(86) N° demande PCT/PCT Application No.: EP 2001/009385  
(87) N° publication PCT/PCT Publication No.: 2002/015311  
(30) Priorité/Priority: 2000/08/14 (10039674.7) DE

(51) Cl.Int.<sup>7</sup>/Int.Cl.<sup>7</sup> H01M 8/02, H01M 8/10  
(71) Demandeur/Applicant:  
BASF AKTIENGESELLSCHAFT, DE  
(72) Inventeurs/Inventors:  
FISCHER, KLAUS, DE;  
BARTHOLOMEYZIK, WILLI, DE  
(74) Agent: ROBIC

(54) Titre : PLAQUE BIPOLAIRE POUR CELLULES A COMBUSTIBLE A MEMBRANE D'ELECTROLYTE POLYMERE  
(54) Title: BIPOLAR PLATE FOR PEM FUEL CELLS



(57) Abrégé/Abstract:

The invention relates to a bipolar plate for PEM fuel cells, comprising an internal metal layer and two non-conducting plastic layers, arranged on both sides of and surrounding the metal layer and forming the surfaces of the bipolar plates. The metal layer comprises one or several electrically conducting connections with both surfaces and the plastic layers comprise surface channels for gas transport. The invention further relates to a bipolar plate for PEM fuel cells made from a non-conducting plastic with channels for gas transport on both surfaces and which is metal-coated except in the peripheral regions. The metal coatings on both sides are electrically connected by means of one or several metal contacts extending through the plastic.

Canada

<http://opic.gc.ca> • Ottawa-Hull K1A 0C9 • <http://cipo.gc.ca>

OPIC • CIPU 191

OPIC



CIPU



(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
21. Februar 2002 (21.02.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 02/15311 A2

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: H01M 8/02, 8/10

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/09385

(22) Internationales Anmeldedatum:  
14. August 2001 (14.08.2001)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
100 39 674.7 14. August 2000 (14.08.2000) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): FISCHER, Klaus [DE/DE]; Alwin-Mittasch-Platz 4, 67063 Ludwigshafen (DE). BARTHOLOMEY, Willi [DE/DE]; Heinrich-Brauch-Strasse 2a, 67454 Haßloch (DE).

(74) Anwalt: ISENBRUCK, Günter; Bardehle, Pagenberg, Geissler, Altenburg, Dost, Isenbruck, Theodor-Heuss-Anlage 12, 68165 Mannheim (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: BIPOLAR PLATE FOR PEM FUEL CELLS

(54) Bezeichnung: BIPOLARPLATTE FÜR PEM-BRENNSTOFFZELLEN

(57) Abstract: The invention relates to a bipolar plate for PEM fuel cells, comprising an internal metal layer and two non-conducting plastic layers, arranged on both sides of and surrounding the metal layer and forming the surfaces of the bipolar plates. The metal layer comprises one or several electrically conducting connections with both surfaces and the plastic layers comprise surface channels for gas transport. The invention further relates to a bipolar plate for PEM fuel cells made from a non-conducting plastic with channels for gas transport on both surfaces and which is metal-coated except in the peripheral regions. The metal coatings on both sides are electrically connected by means of one or several metal contacts extending through the plastic.

(57) Zusammenfassung: Beschrieben werden eine Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus einer innenliegenden Metallschicht und zwei beidseitig auf der Metallschicht aufliegenden und diese umschließenden nicht leitfähigen Kunststoffschichten, die die Oberflächen der Bipolarplatten bilden, wobei die Metallschicht mit beiden Oberflächen eine oder mehrere elektrisch leitende Verbindungen aufweist und die Kunststoffschichten oberflächliche Kanäle zum Gastransport aufweisen, und eine Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus nicht leitfähigem Kunststoff, die an beiden Oberflächen Kanäle zum Gastransport aufweist und die mit Ausnahme des Kantenbereichs metallbeschichtet ist, wobei die beidseitigen Metallbeschichtungen durch den Kunststoff hindurch durch eine oder mehrere Metallkontaktierungen elektrisch leitend verbunden sind.

WO 02/15311 A2

---

## Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen

---

5

Die Erfindung betrifft Bipolarplatten für PEM-Brennstoffzellen, ihre Herstellung und Verwendung in Brennstoffzellen-Stacks und deren Anwendung zur Stromversorgung in mobilen und stationären Einrichtungen.

Bislang werden in Kraftfahrzeugen überwiegend Verbrennungsmotoren zum Antrieb eingesetzt, die Erdölprodukte als Treibstoff erfordern. Da die Ressourcen an Erdöl begrenzt sind und die Verbrennungsprodukte einen nachteiligen Umwelteinfluß haben können, wurden in den letzten Jahren verstärkt Forschungen nach alternativen Antriebskonzepten betrieben.

Die Nutzung von elektrochemischen Brennstoffzellen für mobile und stationäre Energieversorgungen findet dabei zunehmendes Interesse.

20

Derzeit existieren unterschiedliche Typen von Brennstoffzellen, deren Wirkungsprinzip allgemein auf der elektrochemischen Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff zum Endprodukt Wasser basiert. Sie lassen sich nach Art des verwendeten leitfähigen Elektrolyten, dem Betriebstemperaturniveau und realisierbaren Leistungsbereichen einordnen. Für automobiler Anwendungen sind Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen (PEM-Brennstoffzellen, auch abgekürzt als PEFC) besonders geeignet. Sie werden üblicherweise bei einer Temperatur im Bereich von 50 bis 90°C betrieben und liefern zur Zeit im kompletten Stack elektrische Leistungen im Bereich von 1 bis 75 kW (PKW) und bis 250 kW (NFZ, Omnibus).

30

In einer PEM-Brennstoffzelle wird die elektrochemische Reaktion von Wasserstoff mit Sauerstoff zu Wasser durch die Einfügung einer protonenleitenden Membran zwischen die Anoden- und die Kathodenelektrode in die beiden Teilschritte Reduktion und Oxidation aufgeteilt. Hierbei erfolgt eine Ladungstrennung, die als Spannungsquelle genutzt werden kann. Entsprechende Brennstoffzellen sind beispielsweise in "Brennstoffzellen-Antrieb, innovative Antriebskonzepte, Komponenten und Rahmenbedingungen", Skript zur

35

- 2 -

Fachkonferenz der IIR Deutschland GmbH, 29. bis 31. Mai 2000 in Stuttgart zusammengefaßt.

- 5 Eine einzelne PEM-Brennstoffzelle weist einen symmetrischen Aufbau auf. Auf eine Polymermembran folgen beidseitig je eine Katalysatorschicht und Gasverteilerschicht, an die sich eine bipolare Platte anschließt. Stromkollektoren dienen zum Abgreifen der elektrischen Spannung, während Endplatten die Zudosierung der Reaktionsgase und Abführung der Reaktionsprodukte sicherstellen.
- 10 Die Bipolarplatte verbindet dabei zwei Zellen mechanisch und elektrisch. Da die Spannung einer einzelnen Zelle im Bereich um 1 V liegt, ist es für praktische Anwendungen notwendig, zahlreiche Zellen hintereinander zu schalten. Häufig werden bis zu 150 Zellen, durch Bipolarplatten getrennt, aufeinander gestapelt. Die Zellen werden dabei so aufeinander gestapelt, daß die Sauerstoffseite der einen Zelle mit der Wasserstoffseite der
- 15 nächsten Zelle über die Bipolarplatte verbunden ist. Die Bipolarplatte erfüllt dabei mehrere Funktionen. Sie dient zur elektrischen Verschaltung der Zellen, zur Zuführung und Verteilung von Reaktanten (Reaktionsgasen) und Kühlmittel und zur Trennung der Gasräume. Dabei muß eine Bipolarplatte folgende Eigenschaften erfüllen:
- 20 - chemische Beständigkeit gegen feuchte oxidierende und reduzierende Bedingungen
  - Gasdichtheit
  - hohe Leitfähigkeit
  - geringe Übergangswiderstände
  - 25 - Maßhaltigkeit
  - niedrige Kosten in bezug auf Material und Fertigung
  - Gestaltungsfreiheit
  - hohe mechanische Belastbarkeit
  - Korrosionsbeständigkeit
  - 30 - geringes Gewicht.

Derzeit werden drei unterschiedliche Arten von Bipolarplatten verwendet. Zum einen werden metallische Bipolarplatten eingesetzt, die beispielsweise aus Edelstählen bzw. beschichteten anderen Werkstoffen, wie Aluminium oder Titan aufgebaut sind.

Metallische Werkstoffe zeichnen sich durch hohe Gasdichtigkeit, Maßhaltigkeit und hohe elektrische Leitfähigkeit aus.

5 Graphitische Bipolarplatten können durch Pressen oder Fräsen in die geeignete Form gebracht werden. Sie zeichnen sich durch chemische Beständigkeit und geringe Übergangswiderstände aus, haben aber neben einem hohen Gewicht ein unzureichendes mechanisches Verhalten.

Komposit-Materialien sind aus speziellen Kunststoffen aufgebaut, die leitfähige Füllstoffe, etwa auf Basis von Kohlenstoff, aufweisen.

10

In der WO 98/33224 sind Bipolarplatten aus Eisenlegierungen beschrieben, die hohe Anteile an Chrom und Nickel aufweisen.

15

Aus der GB-A-2 326 017 sind Bipolarplatten aus Kunststoffmaterial bekannt, die durch elektrisch leitfähige Füllstoffe, wie Kohlepulver leitfähig gemacht werden. Zusätzlich kann eine oberflächliche Metallbeschichtung vorliegen, die über die Kanten der Bipolarplatte eine elektrisch leitfähige Verbindung zwischen zwei Zellen ermöglicht.

20

Gemäß WO 98/53514 wird ein Polymerharz durch Eintragen eines elektrisch leitfähigen Pulvers und eines Hydrophilisierungsmittels behandelt. Mit Siliciumdioxidteilchen und Graphitpulver gefüllte Polymermassen werden als Bipolarplatten eingesetzt. Insbesondere finden dabei Phenolharze Anwendung.

25

DE-A 196 02 315 betrifft flüssigkeitsgekühlte Brennstoffzellen mit Verteilungskanälen in der Zellfläche. Die Zellfläche kann aus verschiedenen Materialien bestehen, je nach ihrer Funktion. Die Separatoren sind z.B. aus Graphit, Titan und/oder Metallegierungen. Zur Vergleichmäßigung des Stromabgriffs werden Gewebe oder Netze aus Materialien verwendet, die ähnlich denen der Separatoren sind. Rahmenbereiche sind z.B. aus Kunststoff gebildet.

30

In US 5,776,624 ist eine Bipolarplatte aus zusammengelöteten Metallschichten offenbart. Zwischen den Metallschichten sind Kanäle für Kühlmittel. Die Schichten sind über Lötmetall, bzw. bevorzugt Ni-Legierungen, leitend gekoppelt.

35

US 6,071,635 betrifft von Flüssigkeit oder Gas durchströmte Platten, z.B. Bipolarplatten, die aus leitenden und nicht-leitenden Materialien aufgebaut sind. Diese Materialien bilden

Teile von Anschlußflächen und/oder Kanälen auf den Oberflächen der Platten. Die leitenden Materialien bilden elektrische Leitungen auf der Oberfläche der Platte und die nicht-leitenden Materialien können Verstärkungen und/oder Abdichtungen der Kanäle oder Teile der Peripherie der Plattenoberfläche bilden. Sie können spritzgegossen werden.

5

Da Bipolarplatten kritische Funktionselemente von PEM-Brennstoffzellen-Stacks sind, die zu einem erheblichen Anteil zu den Kosten und dem Gewicht der Stacks beitragen, besteht große Nachfrage nach Bipolarplatten, die das vorstehend genannte Anforderungsprofil erfüllen und die Nachteile der bekannten Bipolarplatten vermeiden. Insbesondere soll eine

10

unaufwendige und kostengünstige Fertigung von Bipolarplatten möglich sein.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch eine Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus einer innenliegenden Metallschicht und zwei beidseitig auf der Metallschicht aufliegenden und diese umschließenden nicht leitfähigen

15

Kunststoffschichten, die die Oberflächen der Bipolarplatten bilden, wobei die Metallschicht mit beiden Oberflächen eine oder mehrere elektrisch leitende Verbindungen aufweist und die Kunststoffschichten oberflächliche Kanäle zum Gastransport aufweisen.

20

Die Aufgabe wird weiterhin gelöst durch eine Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus nicht leitfähigem Kunststoff, die an beiden Oberflächen Kanäle zum Gastransport aufweist und die mit Ausnahme des Kantenbereichs metallbeschichtet ist, wobei die beidseitigen Metallbeschichtungen durch den Kunststoff hindurch durch eine oder mehrere Metallkontaktierungen elektrisch leitend verbunden sind.

25

Dabei können in der erstgenannten Bipolarplatte die Kunststoffschichten an beiden Oberflächen mit Ausnahme des Kantenbereichs Metallbeschichtungen aufweisen, die mit den elektrisch leitenden Verbindungen elektrisch leitend verbunden sind.

30

Erfindungsgemäß wird bei der Konstruktion der Bipolarplatte eine Funktionstrennung zwischen Geometrie (Gestaltung der Gaskanäle) und elektrisch leitfähigen Strukturen vorgenommen. Die Leitfähigkeitsfunktion kann dabei entweder durch das Umspritzen einer Metallplatte (innenliegende Metallschicht) oder durch das nachträgliche metallische Beschichten eines Spritzgußteils oder eines Teils der Oberfläche des Spritzgußteils erfolgen.

35

Durch die erfindungsgemäße Funktionstrennung läßt sich die leitfähige Bipolarplatte wesentlich wirtschaftlicher fertigen. Der Einsatz zweier Komponenten bietet die Möglichkeit, jede Einzelkomponente hinsichtlich ihrer Funktion und Materialeigenschaft zu optimieren.

5

Die erfindungsgemäße Bipolarplatte ist im allgemeinen flächig ausgestaltet und weist damit zwei gegenüberliegende Oberflächen auf. Im Kantenbereich werden die Bipolarplatten mit anderen Komponenten der Brennstoffzellen zu Stacks zusammengepreßt. Daher weisen die erfindungsgemäßen Bipolarplatten in diesen  
10 Randbereichen der Oberfläche keine Metallbeschichtungen auf, sondern weisen geeignete Mittel zur gasdichten Verbindung der Bipolarplatten mit den anderen Komponenten der Zellen auf oder sind zur Aufnahme derartiger Mittel eingerichtet. Der Ausdruck „Kantenbereich“ bezeichnet gerade den Randbereich der Oberflächen, der für die Verbindung der Bipolarplatten mit den anderen Komponenten der Brennstoffzellen  
15 benötigt wird.

Gemäß einer ersten Ausführungsform der Erfindung weist die Bipolarplatte eine innenliegende Metallschicht (Platine) und zwei beidseitig auf der Metallschicht aufliegende und diese umschließende nicht leitfähige Kunststoffschichten auf. Die  
20 innenliegende Metallschicht (Platine) kann dabei eine beliebige geeignete Geometrie aufweisen. Es kann sich beispielsweise um ein Blech oder eine Folie handeln, die elektrisch leitende Verbindungen zu beiden Oberflächen aufweist. Es kann sich beispielsweise um eine Folie oder ein Blech handeln, in dem vorspringende Strukturen, wie Grate, Nasen, Noppen usw. vorgesehen sind, die bis an die Oberfläche der  
25 Kunststoffschichten reichen. Die Metallschicht kann auch als Gitter, Gewirk, Gewebe oder als eine andere Geometrie ausgeführt sein, sofern sie eine elektrisch leitende Verbindung zwischen den beiden Oberflächen der Kunststoffschichten ermöglicht. Die Dicke und Beschaffenheit der Metallschicht kann dabei frei gewählt werden, sofern eine ausreichende Leitfähigkeit erreicht wird, die das Überschreiten eines maximal gewünschten  
30 Übergangswiderstandes verhindert.

Eine derartige Konstruktion der Metallschicht ist in Figur 1 in perspektivischer Ansicht und als Querschnittsansicht dargestellt. Die Metallschicht weist zu beiden Seiten hervorspringende Nasen auf, die bis zur Oberfläche der später aufgetragenen  
35 Kunststoffschicht reichen.



Die Kunststoffstruktur weist dabei im Oberflächenbereich die erforderlichen Kanäle zum Gastransport auf.

5 Gemäß der zweiten Ausführungsform der Erfindung ist die Bipolarplatte aus einem nicht leitfähigen Kunststoff aufgebaut, wobei die Platte an beiden Oberflächen Metallbeschichtungen aufweist. Die Randbereiche bzw. Kantenbereiche der Platte weisen dabei keine derartigen Metallbeschichtungen auf, so daß die beiden Oberflächen nicht über die Kanten der Platte hinweg miteinander leitend verbunden werden. Die elektrisch leitende Verbindung der beiden Oberflächenbeschichtungen wird durch  
10 Metallkontaktierungen sichergestellt, die durch den Kunststoff hindurch die beidseitigen Metallschichten verbinden. In Fig. 2 ist eine derartige Bipolarplatte perspektivisch und teilweise als Querschnittsansicht dargestellt.

Die Bipolarplatte aus Kunststoff weist im allgemeinen eine Plattendicke von  $> 2$  mm auf.  
15 Bevorzugt beträgt die Plattendicke 2,1 mm bis 5,0 mm, besonders bevorzugt 2,5 mm bis 3,5 mm. Die Schichtdicke der Metallbeschichtungen beträgt im allgemeinen 0,05 mm bis 0,15 mm, bevorzugt 0,12 bis 0,15 mm. Die Plattendicken von bisher eingesetzten Bipolarplatten betragen üblicherweise 5 mm. Somit kann, bei der Vielzahl an Einzelplatten, die für einen Brennstoffzellen-Stack verwendet werden, über die mit den  
20 erfindungsgemäßen Bipolarplatten erreichte Reduzierung der Plattendicke sowie durch die Verwendung von Kunststoff anstelle von z.B. Graphit das Gesamtgewicht sowie der in Anspruch genommene Bauraum einer Brennstoffzelle erheblich verringert werden.

Es können auch beide Ausführungsformen der Bipolarplatte vereint werden, wie es in Fig. 25 3 dargestellt ist. Dabei wird die innenliegende Metallschicht als gelochte Metallplatte ausgeführt. Die um die Metallschicht liegende Kunststoffschicht weist an beiden Oberflächen Gaskanäle auf. Zudem liegt auf der Oberfläche eine leitfähige Beschichtung vor, die über Kontaktierungen mit der Metallschicht verbunden ist.

30 Die in den Figuren 1 bis 3 dargestellten Geometrien sind Beispiele einer Vielzahl möglicher Gestaltungsvarianten. Die Bezugszeichen in den Figuren bedeuten dabei folgendes:

- 1 Gaskanäle
- 35 2 leitfähige Beschichtung

3 Kunststoffmaterial

4 Metallschicht, beispielsweise (gelochte) Metallplatte

5 elektrisch leitende Verbindung (Kontaktierung).

Die Anzahl der an der Oberfläche der Bipolarplatte vorliegenden elektrisch leitfähigen Verbindungen wird anhand der praktischen Erfordernisse frei gewählt. Beispielsweise wird  
10 die Größe und Anzahl der Verbindungen so gewählt, daß der Durchgangswiderstand der Bipolarplatte nicht zu groß wird. Zudem sollte eine gute elektrisch leitfähige Verbindung mit den an der Bipolarplatte anliegenden Gasverteilerschichten (beispielsweise Graphitpapier) gewährleistet sein.

15 Als Kunststoffmaterial können erfindungsgemäß alle verstärkten und unverstärkten thermoplastischen oder duroplastischen Kunststoffe eingesetzt werden, die gegen feuchte oxidierende und reduzierende Bedingungen, wie sie in PEM-Brennstoffzellen herrschen, chemisch stabil sind. Zudem sollten sie gasdicht und maßhaltig sein. Beispiele geeigneter Materialien sind Polyamide, Polybutylenterephthalat, *Polyoxymethylen*, *Polysulfon*,  
20 *Polyethersulfon*, Polyphenylenoxid, *Polyetherketon*, Polypropylen, Polyester, Ethylen-Propylen-Copolymere, ungesättigte Polyesterharze, Phenol-Formaldehyd-Harze und andere technisch eingesetzte Kunststoffe.

Des weiteren sind auch Blends der genannten Kunststoffe geeignet sowie faser- bzw.  
25 mineralverstärkte Kunststoffe.

Für die metallische Oberflächenschicht eignen sich beispielsweise alle korrosionsbeständigen Metalle, wie Cr, Ni, Cu, Mo, Pb, Ti, V oder auch Graphit. Sie können nach beliebigen geeigneten Verfahren aufgebracht werden, beispielsweise durch  
30 Bedampfen, Sputtern, Galvanisieren, Plasmabeschichten oder Lackieren.

Die innenliegende Metallschicht und die elektrisch leitenden Verbindungen können aus allen leitfähigen korrosionsbeständigen Metallen oder Legierungen gebildet werden. Beispielsweise können Cr-Ni-Stähle zum Einsatz kommen. Weitere geeignete Materialien  
35 sind dem Fachmann bekannt.

Die Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung von Bipolarplatten durch Verformen einer Metallschicht zur Ausbildung der elektrisch leitenden Verbindungen und nachfolgendes Umspritzen oder Umpressen der Metallschicht mit dem Kunststoff. Außerdem kann die Bipolarplatte durch Spritzgießen oder Pressen des Kunststoffs in die gewünschte Form und nachfolgendes Beschichten der Oberflächen mit dem Metall unter Ausbildung der Metallkontaktierungen hergestellt werden.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform werden Kunststoffplatten zur Herstellung der Bipolarplatten eingesetzt, die Öffnungen mit einer spitzen Verengung aufweisen. In Figur 4a ist ein Beispiel einer solchen Kunststoffplatte dargestellt. Durch anschließendes Beschichten dieser Kunststoffplatte mit dem gewünschten Metall gemäß einem der vorstehend genannten Verfahren kommt es an der Verengung zu einem verstärkten Materialauftrag, so daß sich ein Metallpfropf bildet, der die Öffnung in der Kunststoffplatte verschließt und gleichzeitig einen elektrischen Kontakt zwischen den beiden Oberflächen herstellt (Figur 4b). Durch den Einsatz der beschriebenen Kunststoffplatten können in einem Arbeitsgang mit herkömmlichen Beschichtungsmethoden gebrauchsfertige Bipolarplatten hergestellt werden.

In Figur 4a und 4b ist ein Beispiel für eine geeignete Geometrie der Kunststoffplatte dargestellt. Dabei stellt Figur 4a die Kunststoffplatte im unbeschichteten Zustand Figur 4b die Kunststoffplatte im beschichteten Zustand dar. Die Bezugszeichen in den Figuren bedeuten folgendes:

- 1 Gaskanäle
- 2 leitfähige Beschichtung
- 3 Kunststoffmaterial
- 5 elektrisch leitende Verbindung (Kontaktierung)

Insbesondere die räumliche Gestaltung unter Verwendung des Kunststoffmaterials erlaubt durch das Spritzgießen die einfache Herstellung selbst komplexer geometrischer Strukturen.

Die erfindungsgemäßen Bipolarplatten werden im allgemeinen in Brennstoffzellen-Stacks aus mehreren Einzelzellen eingesetzt. Derartige Brennstoffzellen-Stacks werden durch wiederholtes Aufeinanderschichten von Bipolarplatte, Gasverteilerschicht, Katalysatorschicht, Polymermembran, Katalysatorschicht und Gasverteilerschicht

hergestellt. Zwischen jeweils zwei Bipolarplatten liegt dabei eine Einzelzelle vor. Zudem werden endständige Stromkollektoren und Endplatten angefügt. Die aufeinandergeschichteten Elemente des Brennstoffzellen-Stacks werden verbunden und abgedichtet. Zur Abdichtung können im Randbereich der erfindungsgemäßen Bipolarplatten Elastomerdichtungen aufgebracht sein, oder es kann eine Nahtgeometrie für  
5 das nachträgliche Schweißen, Kleben oder Spritzschweißen direkt aus dem Kunststoff angeformt werden.

Im ersteren Fall erfolgt die Abdichtung durch festes Aufeinanderpressen der Platten. Im  
10 zweiten Fall können die Platten untereinander verschweißt oder verklebt werden. Das Verschweißen kann nach beliebigen geeigneten Verfahren durchgeführt werden, beispielsweise im Ultraschall-, Heizelement-, Vibrations- oder Laserschweißverfahren. Die einzelnen Elemente der Brennstoffzellen können auch durch Verkleben oder Spritzschweißen verbunden und abgedichtet werden.

15

Der Brennstoffzellen-Stack kann auch durch Umspritzen des gesamten Plattenstapels im Spritzgußverfahren mit geeigneten Polymerwerkstoffen abgedichtet und verbunden werden.

20

Eine angeformte Elastomerdichtung kann beispielsweise im Zwei-Komponenten-Spritzguß gleichzeitig mit der Kunststoffschicht ausgebildet werden.

Insbesondere das Vorsehen eines erhöhten umlaufenden Randes mit angeformter Schweißnahtgeometrie erlaubt ein kostengünstiges gasdichtes Verbinden der Elemente zu  
25 einem Brennstoffzellen-Stack.

Die erfindungsgemäßen Brennstoffzellen-Stacks können beispielsweise zur Stromversorgung in mobilen und stationären Einrichtungen eingesetzt werden. Neben einer  
30 Hausversorgung kommen dabei insbesondere die Stromversorgung von Fahrzeugen, wie Land-, Wasser- und Luftfahrzeugen sowie autarken Systemen, wie Satelliten, in Betracht.

Die erfindungsgemäßen Brennstoffzellen-Stacks sind vorzugsweise in einem Temperaturbereich von  $-40$  bis  $+120^{\circ}\text{C}$  stabil. Der Arbeitstemperaturbereich liegt dabei  
35 insbesondere im Bereich um  $100^{\circ}\text{C}$ . Die Temperierung kann dabei durch geeignete

- 10 -

Kühlmedien erreicht werden, die zumindest mit einem Teil des Stacks in Verbindung stehen.

5 Die erfindungsgemäßen Bipolarplatten vereinen eine vorteilhafte Kombination von niedrigem Gewicht, guter elektrischer Leitfähigkeit, Gasdichtigkeit, bzw. Abdichtbarkeit und Gestaltung von Gaskanälen.

**Patentansprüche**

1. Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus einer innenliegenden Metallschicht und zwei beidseitig auf der Metallschicht aufliegenden und diese umschließenden nicht leitfähigen Kunststoffschichten, die die Oberflächen der Bipolarplatten bilden, wobei die Metallschicht mit beiden Oberflächen eine oder mehrere elektrisch leitende Verbindungen aufweist und die Kunststoffschichten oberflächliche Kanäle zum Gastransport aufweisen.
2. Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus nicht leitfähigem Kunststoff, die an beiden Oberflächen Kanäle zum Gastransport aufweist und die mit Ausnahme des Kantenbereichs metallbeschichtet ist, wobei die beidseitigen Metallbeschichtungen durch den Kunststoff hindurch durch eine oder mehrere Metallkontaktierungen elektrisch leitend verbunden sind.
3. Bipolarplatte nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kunststoffschichten an beiden Oberflächen mit Ausnahme des Kantenbereichs Metallbeschichtungen aufweisen, die mit den elektrisch leitenden Verbindungen elektrisch leitend verbunden sind.
4. Bipolarplatte nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß im Randbereich mindestens einer der Oberflächen eine Elastomerdichtung aufgebracht ist ist oder eine Nahtgeometrie für das nachträgliche Schweißen, Kleben oder Spritzschweißen aus dem Kunststoff angeformt ist.
5. Bipolarplatte nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß Kunststoffe ausgewählt aus Polyamiden, Polybutylenterephthalat, *Polyoxymethylen*, *Polysulfon*, *Polyethersulfon*, Polyphenylenoxid, *Polyetherketon*, Polypropylen, Polyester, Ethylen-Propylen-Copolymeren, ungesättigten Polyesterharzen, Phenol-Formaldehyd-Harzen eingesetzt werden.
6. Verfahren zur Herstellung von Bipolarplatten gemäß Anspruch 1 durch Verformen einer Metallschicht zur Ausbildung der elektrisch leitenden Verbindungen und nachfolgendes Umspritzen der Metallschicht mit dem Kunststoff.

- 12 -

7. Verfahren zur Herstellung von Bipolarplatten gemäß Anspruch 2 durch Spritzgießen des Kunststoffes in die gewünschte Form und nachfolgendes Beschichten der Oberflächen mit dem Metall unter Ausbildung der Metallkontaktierungen.
8. Brennstoffzellen-Stack aus mehreren Brennstoffzellen, die Bipolarplatten gemäß  
5 einem der Ansprüche 1 bis 5 enthalten.
9. Verfahren zur Herstellung von Brennstoffzellen-Stacks gemäß Anspruch 8 durch wiederholtes Aufeinanderschichten von Bipolarplatten, Gasverteilerschicht, Katalysatorschicht, Polymermembran, Katalysatorschicht und Gasverteilerschicht,  
10 sowie jeweils endständigen Stromkollektoren und Endplatten, Verbinden und Abdichten der Schichten zum Brennstoffzellen-Stack.
10. Verwendung von Brennstoffzellen-Stacks gemäß Anspruch 9 zur Stromversorgung in mobilen und stationären Einrichtungen.

15

FIG.1

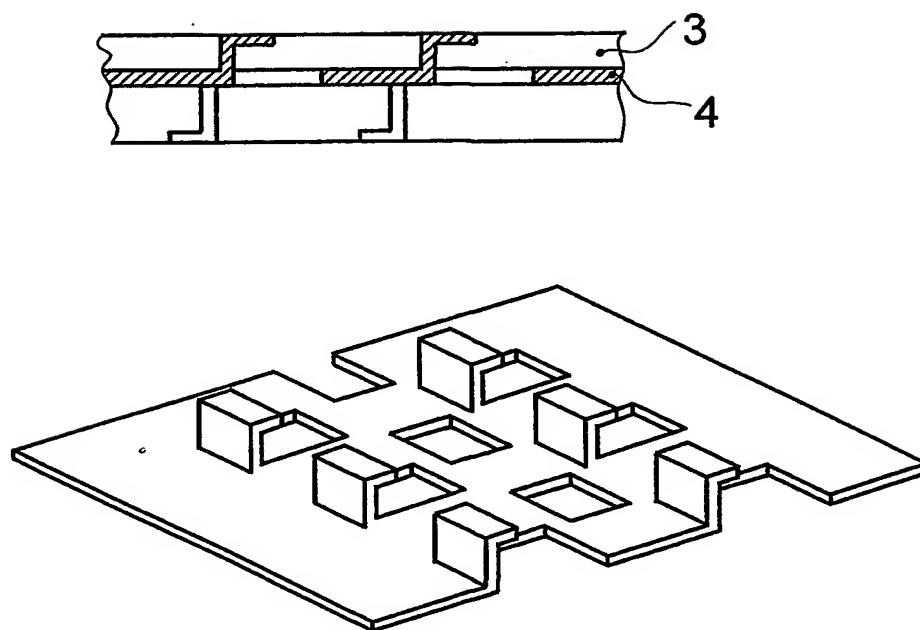




FIG.2

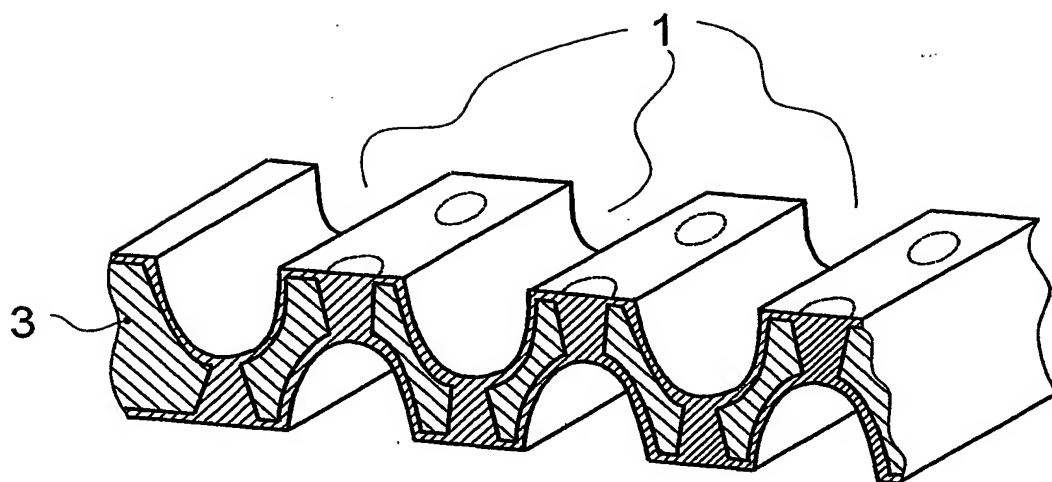


FIG.3

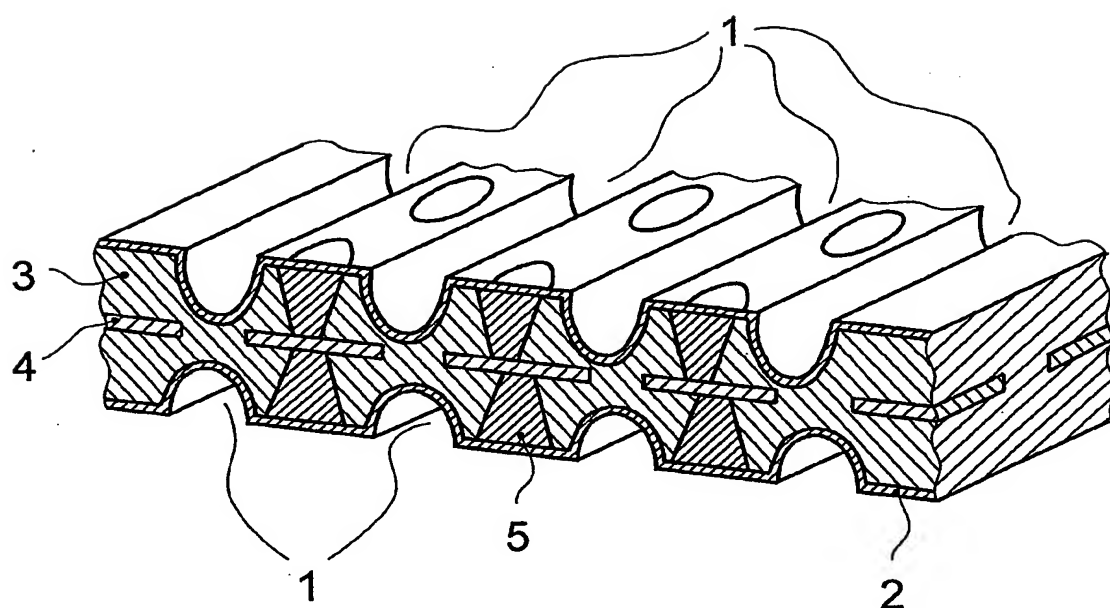


FIG.4A

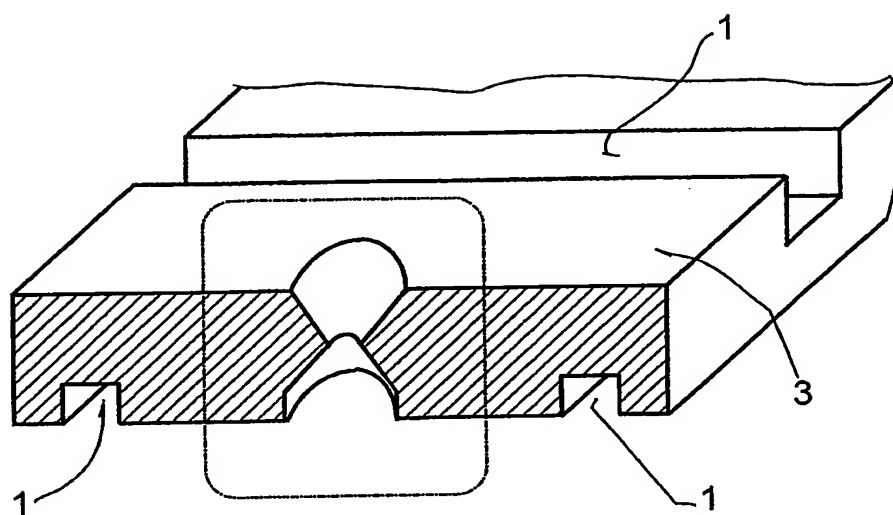
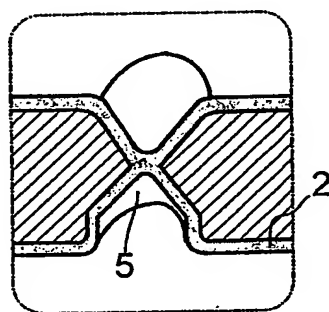


FIG.4B





(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
21. Februar 2002 (21.02.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 02/15311 A3**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: H01M 8/02, 8/10

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/09385

(22) Internationales Anmeldedatum:  
14. August 2001 (14.08.2001)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
100 39 674.7 14. August 2000 (14.08.2000) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): FISCHER, Klaus [DE/DE]; Alwin-Mittasch-Platz 4, 67063 Ludwigshafen (DE). BARTHOLOMEYZIK, Willi [DE/DE]; Heinrich-Brauch-Strasse 2a, 67454 Haßloch (DE).

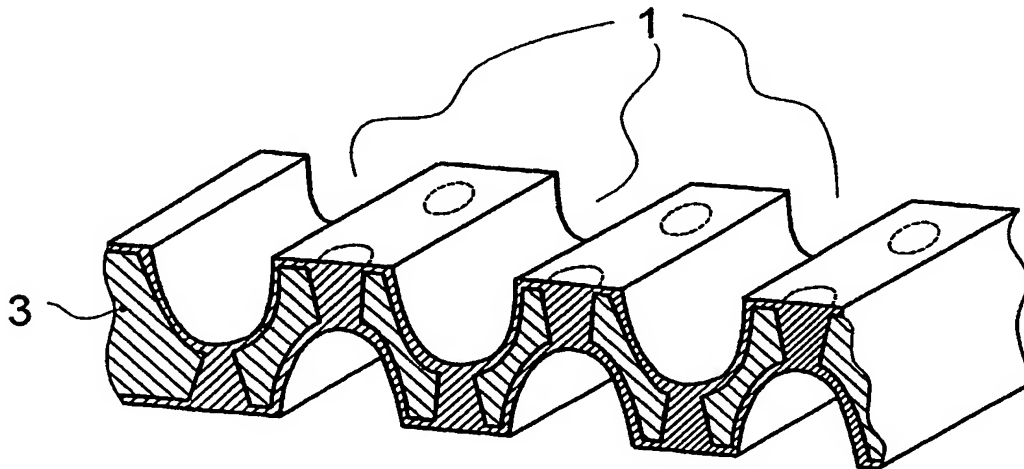
(74) Anwalt: ISENBRUCK, Günter; Bardehle, Pagenberg, Geissler, Altenburg, Dost, Isenbruck, Theodor-Heuss-Anlage 12, 68165 Mannheim (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: BIPOLAR PLATE FOR PEM FUEL CELLS

(54) Bezeichnung: BIPOLARPLATTE FÜR PEM-BRENNSTOFFZELLEN



(57) Abstract: The invention relates to a bipolar plate for PEM fuel cells, comprising an internal metal layer and two non-conducting plastic layers, arranged on both sides of and surrounding the metal layer and forming the surfaces of the bipolar plates. The metal layer comprises one or several electrically conducting connections with both surfaces and the plastic layers comprise surface channels for gas transport. The invention further relates to a bipolar plate for PEM fuel cells made from a non-conducting plastic with channels for gas transport on both surfaces and which is metal-coated except in the peripheral regions. The metal coatings on both sides are electrically connected by means of one or several metal contacts extending through the plastic.

(57) Zusammenfassung: Beschrieben werden eine Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus einer innenliegenden Metallschicht und zwei beidseitig auf der Metallschicht aufliegenden und diese umschließenden nicht leitfähigen Kunststoffschichten, die die Oberflächen der Bipolarplatten bilden, wobei die Metallschicht mit beiden Oberflächen eine oder mehrere elektrisch leitende Verbindungen aufweist und die Kunststoffschichten oberflächliche Kanäle zum Gastransport aufweisen, und eine Bipolarplatte für PEM-Brennstoffzellen aus nicht leitfähigem Kunststoff, die an beiden Oberflächen Kanäle zum Gastransport aufweist und die mit Ausnahme des Kantenbereichs metallbeschichtet ist, wobei die beidseitigen Metallbeschichtungen durch den Kunststoff hindurch durch eine oder mehrere Metallkontaktierungen elektrisch leitend verbunden sind.

WO 02/15311 A3



CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

- (84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist: Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

- (88) **Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts:**

10. Mai 2002

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In. ational Application No

PCT/EP 01/09385

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
IPC 7 H01M8/02 H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 97 50138 A (DU PONT) 31 December 1997 (1997-12-31) page 3, line 36 -page 4, line 31	1,3-6, 8-10
A	EP 1 009 051 A (GEN MOTORS CORP) 14 June 2000 (2000-06-14) claims 1-6	2,8-10
A	WO 00 05775 A (FAUVARQUE JEAN FRANCOIS ; BESSE SERGE (FR); BRONOEL GUY (FR); SORAP) 3 February 2000 (2000-02-03) claims 1,2,15 page 3, line 9-21 page 10, line 15-22	2,5,8-10

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

6 March 2002

Date of mailing of the international search report

14/03/2002

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Haering, C

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In: ational Application No

PCT/EP 01/09385

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 99 60643 A (DOW CHEMICAL CO) 25 November 1999 (1999-11-25) page 11; table 1 page 8, line 10 -page 9, line 23 -----	2,5,8-10
A	WO 98 33224 A (HORNUNG REGINA ;SIEMENS AG (DE); WAIDHAS MANFRED (DE); BIRKLE SIEG) 30 July 1998 (1998-07-30) page 4, line 13-22 claim 5 -----	1



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 01/09385

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9750138	A	31-12-1997	JP 10012246 A CA 2259223 A1 EP 0956604 A1 WO 9750138 A1	16-01-1998 31-12-1997 17-11-1999 31-12-1997
EP 1009051	A	14-06-2000	EP 1009051 A2 JP 2000173631 A	14-06-2000 23-06-2000
WO 0005775	A	03-02-2000	FR 2781606 A1 EP 1110262 A1 WO 0005775 A1 US 2001006745 A1	28-01-2000 27-06-2001 03-02-2000 05-07-2001
WO 9960643	A	25-11-1999	US 6103413 A EP 1080509 A1 WO 9960643 A1	15-08-2000 07-03-2001 25-11-1999
WO 9833224	A	30-07-1998	WO 9833224 A1 EP 0963615 A1 JP 2001508589 T NO 992738 A US 6300001 B1	30-07-1998 15-12-1999 26-06-2001 04-06-1999 09-10-2001

# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/09385

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/02 H01M8/10

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 97 50138 A (DU PONT) 31. Dezember 1997 (1997-12-31) Seite 3, Zeile 36 -Seite 4, Zeile 31 ---	1,3-6, 8-10
A	EP 1 009 051 A (GEN MOTORS CORP) 14. Juni 2000 (2000-06-14) Ansprüche 1-6 ---	2,8-10
A	WO 00 05775 A (FAUVARQUE JEAN FRANCOIS ; BESSE SERGE (FR); BRONOEL GUY (FR); SORAP) 3. Februar 2000 (2000-02-03) Ansprüche 1,2,15 Seite 3, Zeile 9-21 Seite 10, Zeile 15-22 --- -/--	2,5,8-10

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*8\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

6. März 2002

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

14/03/2002

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Haering, C

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/09385

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 99 60643 A (DOW CHEMICAL CO) 25. November 1999 (1999-11-25) Seite 11; Tabelle 1 Seite 8, Zeile 10 -Seite 9, Zeile 23 -----	2,5,8-10
A	WO 98 33224 A (HORNUNG REGINA ;SIEMENS AG (DE); WAIDHAS MANFRED (DE); BIRKLE SIEG) 30. Juli 1998 (1998-07-30) Seite 4, Zeile 13-22 Anspruch 5 -----	1

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

In: Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/09385

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9750138	A	31-12-1997	JP 10012246 A	16-01-1998
			CA 2259223 A1	31-12-1997
			EP 0956604 A1	17-11-1999
			WO 9750138 A1	31-12-1997
EP 1009051	A	14-06-2000	EP 1009051 A2	14-06-2000
			JP 2000173631 A	23-06-2000
WO 0005775	A	03-02-2000	FR 2781606 A1	28-01-2000
			EP 1110262 A1	27-06-2001
			WO 0005775 A1	03-02-2000
			US 2001006745 A1	05-07-2001
WO 9960643	A	25-11-1999	US 6103413 A	15-08-2000
			EP 1080509 A1	07-03-2001
			WO 9960643 A1	25-11-1999
WO 9833224	A	30-07-1998	WO 9833224 A1	30-07-1998
			EP 0963615 A1	15-12-1999
			JP 2001508589 T	26-06-2001
			NO 992738 A	04-06-1999
			US 6300001 B1	09-10-2001